

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

NAKAJIMA, Shigemitsu
Nichiyo Building 3F
11-12, Kanda Mitoshiro-cho
Chiyoda-ku
Tokyo 101-0053
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 14 December 2000 (14.12.00)		IMPORTANT NOTICE	
Applicant's or agent's file reference F1567MCF034			
International application No. PCT/JP00/03582	International filing date (day/month/year) 02 June 2000 (02.06.00)	Priority date (day/month/year) 04 June 1999 (04.06.99)	
Applicant MITSUI CHEMICALS, INC. et al			

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

CN,EP,SG

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 14 December 2000 (14.12.00) under No. WO 00/75941

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a **demand for international preliminary examination** must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.


It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the **national phase**, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer J. Zahra Telephone No. (41-22) 338.83.38	
--	---	---



PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

NAKAJIMA, Shigemitsu
Nichiyo Building 3F
11-12, Kanda Mitoshiro-cho
Chiyoda-ku
Tokyo 101-0053
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 03 August 2000 (03.08.00)	
Applicant's or agent's file reference F1567MCF034	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP00/03582	International filing date (day/month/year) 02 June 2000 (02.06.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 04 June 1999 (04.06.99)
Applicant MITSUI CHEMICALS, INC. et al	

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
04 June 1999 (04.06.99)	11/157604	JP	27 July 2000 (27.07.00)



The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer Khemais BRAHMI Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---



PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)
[PCT36条及びPCT規則70]

REC'D 18 SEP 2001

WIPO PCT

出願人又は代理人 の書類記号 F1567MCF034	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/ IPEA/416）を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/03582	国際出願日 (日.月.年) 02.06.00	優先日 (日.月.年) 04.06.99
国際特許分類 (IPC) Int. Cl ⁷ H01G9/038		
出願人 (氏名又は名称) 三井化学株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。

2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。

☐ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)
この附属書類は、全部で ページである。

3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
- II ☐ 優先権
- III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- IV ☐ 発明の単一性の欠如
- V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ☐ ある種の引用文献
- VII ☐ 国際出願の不備
- VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 25.12.00	国際予備審査報告を作成した日 23.08.01	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 大澤 孝次	5R 7924
電話番号 03-3581-1101 内線 3565		

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (1998年7月)



I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。
 PCT規則70.16, 70.17)

☒ 出願時の国際出願書類

- ☐ 明細書 第 _____ ページ、 出願時に提出されたもの
 明細書 第 _____ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 明細書 第 _____ ページ、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 請求の範囲 第 _____ 項、 出願時に提出されたもの
 請求の範囲 第 _____ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの
 請求の範囲 第 _____ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 請求の範囲 第 _____ 項、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 図面 第 _____ ページ/図、 出願時に提出されたもの
 図面 第 _____ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 図面 第 _____ ページ/図、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 出願時に提出されたもの
 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である _____ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)という翻訳文の言語
☐ PCT規則48.3(b)という国際公開の言語
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3という翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 図面の第 _____ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)



V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

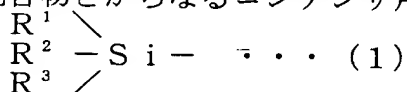
1. 見解

新規性(N)	請求の範囲	1-14	有
	請求の範囲		無
進歩性(IS)	請求の範囲	6-7	有
	請求の範囲	1-5, 8-14	無
産業上の利用可能性(IA)	請求の範囲	1-14	有
	請求の範囲		無

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

請求の範囲1-5, 9-12

国際調査報告で引用された文献1(JP 10-241999 A(日本ケミコン株式会社), 特許請求の範囲, 段落番号[0011]-[0012])には、電解質と式(1)で表されるSi含有基(R^1 、 R^2 、 R^3 がメチル基、エチル基等)からなる化合物とからなるコンデンサ用非水電解液が記載されている。



請求の範囲8

国際調査報告で引用された文献2(JP 11-87184 A(三井化学株式会社), 特許請求の範囲, 段落番号[0028])には、電解質の溶媒として混合溶媒を用い、混合溶媒の成分として、環状炭酸エステル及びリン酸エステルを用いることが記載されている。

請求の範囲13-14

国際調査報告で引用された文献3(JP 10-125560 A(本田技研工業株式会社), 特許請求の範囲)及び同文献4(JP 7-22295 A(富士電気化学株式会社), 特許請求の範囲)には、電気二重層コンデンサにおいて、電解質の溶媒で前処理することが記載されている。

請求の範囲6-7

国際調査報告に記載された各文献からは、新規性なしとすることは、できないと共に、同文献から進歩性なしとすることもできない。また、産業上利用することは、明らかに可能である。



国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 F1567 の書類記号 MCF034	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/03582	国際出願日 (日.月.年) 02.06.00	優先日 (日.月.年) 04.06.99
出願人 (氏名又は名称) 三井化学株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

- a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。
☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。
- b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。
☐ この国際出願に含まれる書面による配列表
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表
☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。
☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。
☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、
第 _____ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。 ☒ なし。
☐ 出願人は図を示さなかった。
☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ H01G9/038

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ H01G9/038, H01G9/035

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	J P, 10-241999, A (日本ケミコン株式会社), 11.9月. 1998 (11.09.98), 特許請求の範囲, 【0011】 - 【0012】 (ファミリーなし)	1-5, 9-12 8, 13-14
Y	J P, 11-87184, A (三井化学株式会社), 30.3月. 1999 (30.03.99), 特許請求の範囲, 【0028】 & E P, 908905, A	8
Y	J P, 10-125560, A (本田技研工業株式会社), 15.5月. 1998 (15.05.98), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	13-14

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

22.08.00

国際調査報告の発送日

05.09.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

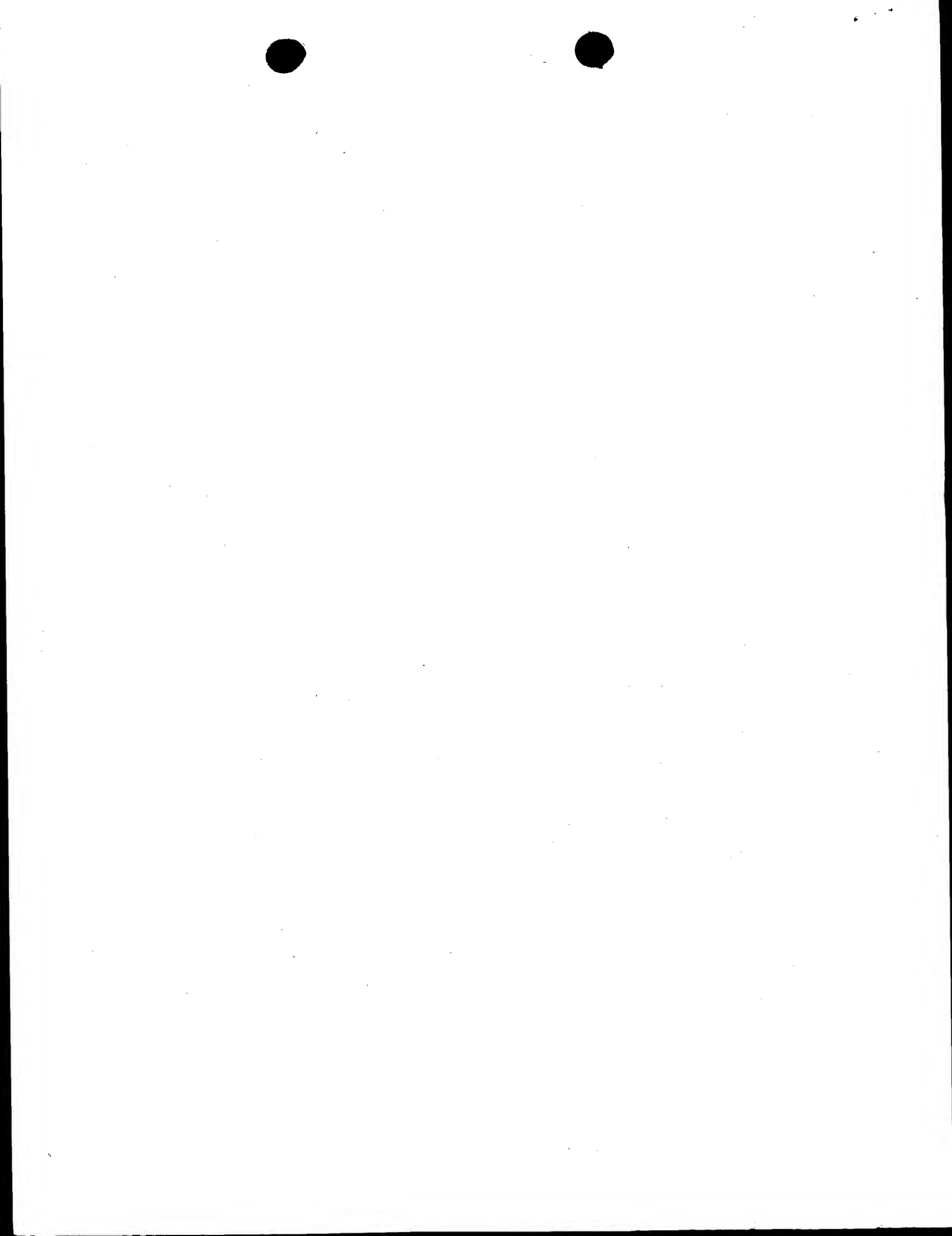
桑原 清

5 R

9375

電話番号 03-3581-1101 内線 3520

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 7-22295, A (富士電気化学株式会社), 24. 1月. 1995 (24. 01. 95), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	13-14
A	WO, 97/42251, A (ダイソー株式会社), 13. 11月. 1997 (13. 11. 97), 特許請求の範囲 & EP, 897941, A	1-14
A	JP, 10-204172, A (ダイソー株式会社), 4. 8月. 1998 (04. 08. 98), 特許請求の範囲 & EP, 838487, A	1-14
A	JP, 8-505650, A (アーサー・ディー・リトル・インコーポレイテッド), 18. 6月. 1996 (18. 06. 96), 特許請求の範囲 & WO, 94/14828, A	1-14
A	JP, 10-69912, A (ジェイエスアール株式会社), 10. 3月. 1998 (10. 03. 98), 特許請求の範囲, 【0003】 - 【0005】 (ファミリーなし)	1-14



PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner
 US Department of Commerce
 United States Patent and Trademark
 Office, PCT
 2011 South Clark Place Room
 CP2/5C24
 Arlington, VA 22202
 ETATS-UNIS D'AMERIQUE
 in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 29 January 2001 (29.01.01)	
International application No. PCT/JP00/03582	Applicant's or agent's file reference F1567MCF034
International filing date (day/month/year) 02 June 2000 (02.06.00)	Priority date (day/month/year) 04 June 1999 (04.06.99)
Applicant MITA, Satoko et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

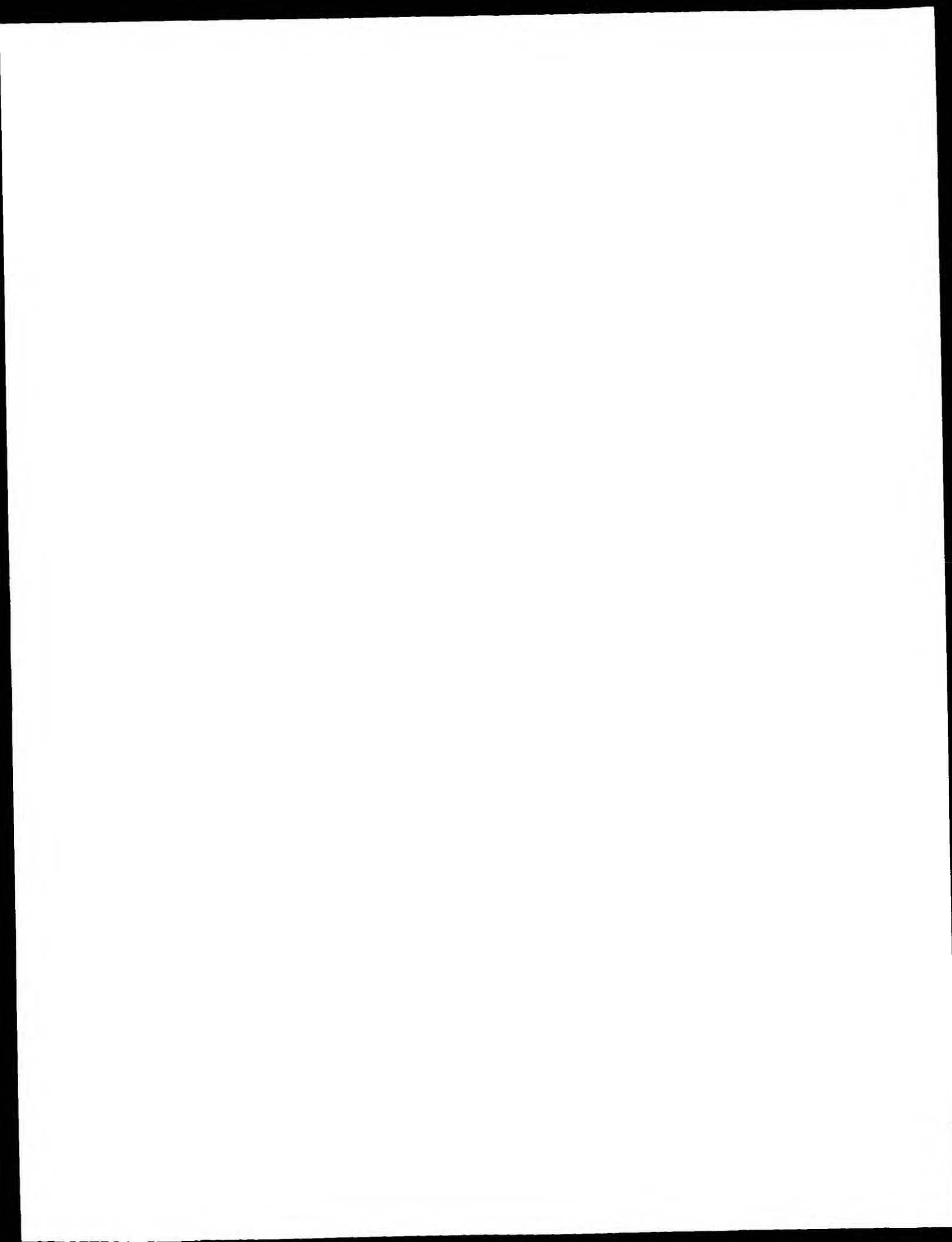
☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
 25 December 2000 (25.12.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer R. Forax Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	--



(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2000 年 12 月 14 日 (14.12.2000)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 00/75941 A1

- (51) 国際特許分類: H01G 9/038
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/03582
- (22) 国際出願日: 2000 年 6 月 2 日 (02.06.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願平 11/157604 1999 年 6 月 4 日 (04.06.1999) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三井化学株式会社 (MITSUI CHEMICALS, INC.) [JP/JP]; 〒100-6070 東京都千代田区霞が関三丁目2番5号 Tokyo (JP).
- (71) 出願人 (ドイツについてのみ): 松下電器産業株式会社 (MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒571-8501 大阪府門真市大字門真1006 番地 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 三田聡子 (MITA, Satoko) [JP/JP]; 〒299-0265 千葉県袖ヶ浦市長浦字拓二号580番地32 三井化学株式会社内 Chiba (JP). 高向芳典 (TAKAMUKU, Yoshinori) [JP/JP]; 〒601-1373 京都府京都市伏見区醍醐中山町21-2 アメニティ醍醐 311 Kyoto (JP).
- (74) 代理人: 中嶋重光 (NAKAJIMA, Shigemitsu); 〒101-0053 東京都千代田区神田美土代町11-12 ニチヨビル 3階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): CN, KR, SG, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (DE, FR, GB).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

WO 00/75941 A1

(54) Title: NONAQUEOUS ELECTROLYTIC SOLUTION, ELECTRODE, AND CAPACITOR CONTAINING THE SAME

(54) 発明の名称: 非水電解液、電極、およびそれを用いたコンデンサ

(57) Abstract: A compound having a silicon-containing group represented by the general formula (R¹, R², R³)Si- is used, together with an organic solvent such as a carbonic ester, as a solvent for electrolytes for use in capacitors. Thus, a capacitor can be provided which is reduced in gas generation from the solvents and is excellent in withstand voltage and charge-discharge cycling characteristics. In the formula, R¹, R², and R³ each is hydrogen, halogeno, alkyl, alkoxy, etc. Examples of the compound having the group include a 3-trialkylsilyl-2-oxazolydinone, an N-trialkylsilylimidazole, a tris(trialkylsilyl) phosphate, an allyltrialkylsilane, and an alkyl N-trialkylsilylcarbamate. A nonaqueous electrolytic solution containing this compound is suitable for use especially in an electric double layer capacitor.



(57) 要約:

コンデンサ用電解質溶媒として、一般式 $(R^1, R^2, R^3) Si$ で表される Si 含有基を有する化合物を炭酸エステル等の有機溶媒と共に使用すると、溶媒からのガス発生が少なく、耐電圧および充放電サイクル特性に優れたコンデンサを提供できる。ここで、 R^1 、 R^2 および R^3 は、水素、ハロゲン、アルキル基、アルコキシ基等である。そのような基を持つ化合物の例として、3-トリアルキルシリル-2-オキサゾリジノン、N-トリアルキルシリルイミダゾール、トリス(トリアルキルシリル)ホスフェート、アリルトリアルキルシラン、アルキル-N-トリアルキルシリルカーバメートが挙げられる。この化合物を含む非水電解液は、特に電気二重層コンデンサ用に適している。

明 細 書

非水電解液、電極、およびそれを用いたコンデンサ

5 [技術分野]

本発明は、S i化合物を含むコンデンサ用非水電解液、電極およびそれを用いたコンデンサに関し、さらに詳しくは、エネルギー密度が高く、耐電圧および充放電サイクル特性に優れたコンデンサ用非水電解液、コンデンサ用電極およびそれを用いたコンデンサに関する。

[背景技術]

電気二重層コンデンサは、電池とコンデンサとの中間容量を持つ小電力の直流電源であって、I Cやメモリのバックアップ電源、二次電池の補助や代替用として広く使用されている。近年、カメラ一体型V T R、携帯電話、ラップトップコンピュータ等の新しく出現してきたポータブル電子機器へその電気二重層コンデンサを利用することが考えられ、そのために電気二重層コンデンサの高エネルギー密度化が要求されている。

この電気二重層コンデンサは、蓄電池のように化学変化を電気エネルギーに変換するものではなく、電極と電解液との界面に生じる電気二重層の大きな容量を利用し、この二重層の電荷を電池の充放電と同じように出し入れすることで電源として使用するものである。

このような電気二重層コンデンサは、2枚の電極とセパレータと通常耐食性の電解液とで構成されている。すなわち、活性炭のような表面積の大きな材料とフッ素樹脂などの結着剤とから成形した2枚の電極が、多孔性セパレータを介して対向するように配置され、

2

この電極と多孔性セパレータとの間、および多孔性セパレータ内を電解液で満たした構造になっている。

その電解液としては、水溶液系電解液と有機溶媒系電解液（非水電解液）とが用いられているが、水溶液系電解液は、耐電圧が約 1 .
5 2 V と低く、高エネルギー密度を要求する電気二重層コンデンサには適していない。これに対し、有機溶媒系電解液（非水電解液）は、水溶液系電解液に比べ、耐電圧が高いので、高エネルギー密度のコンデンサを製造し得る可能性がある。

従来、非水電解液としては、一般に高誘電率である環状炭酸エステルなどの非水溶媒に 4 フッ化ほう酸化合物、4 エチルアンモニウム化合物などの電解質を混合溶解して製造されてきた。しかし、環状炭酸エステル溶媒は、高温で脱炭酸分解反応が起こり、それに伴って多量のガスが発生することから、コンデンサの寿命を短縮すると言われている。また、その電解液は、耐電圧が必ずしも十分とは
10 云えず、一層の充放電サイクル特性の改良が求められている。

[発明の開示]

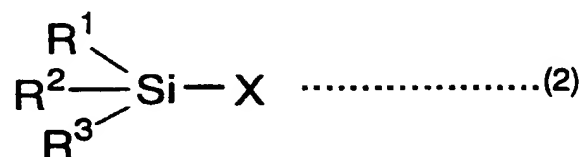
そこで本発明は、電解質溶媒からのガス発生が少なく、高い耐電圧および充放電サイクル特性に優れ、かつ安全性にも優れたコンデンサ用非水電解液、それを用いたコンデンサ用電極、およびそれを用いたコンデンサの提供を目的にする。
20

すなわち本発明は、電解質および式 (1) で表される Si 含有基を有する化合物を含む電解質溶媒とからなるコンデンサ用非水電解液、特に電気二重層コンデンサ用非水電解液に関する。



ここで、 R^1 、 R^2 および R^3 は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1 ～ 6 の炭化水素基、および炭素数 1 ～ 6 のオキシ炭化水素基からなる群から選ばれる 1 価の基であって、その炭化水素基またはオキシ炭化水素基の炭化水素部は鎖状であっても環状であってもよく、また炭化水素部は飽和であっても不飽和であってもよく、さらにその炭化水素部の水素原子の一部がハロゲン原子で置換されていてもよい。また R^1 、 R^2 および R^3 は互いに同一であっても異なってもよい。

前記の式 (1) で表される Si 含有基を有する化合物は、式 (2) で表される化合物が好ましい。



ここで X は、後述するように、オキサゾリジノン基、イミダゾール基、ホスフェート基、フェニル基、アルコキシ基、ハロゲン原子、不飽和アルキル基、カーバメート基、カーボネート基等々からなる群から選ばれるいずれかの基である。

それ等の化合物の中でも、特に N-トリアルキルシリルイミダゾール、トリス (トリアルキルシリル) ホスフェート、4-トリアルキルシリルメチル-1, 3-ジオキソラン-2-オン、トリアルキルクロロシラン、トリフルオロアルキルトリアルキルシラン、アリルトリアルキルシラン、ジアリルジアルキルシラン、トリアリルアルキルシラン、アセチルトリアルキルシラン、アルキル-N-トリアルキルシリルカーバメート、アルキル-N, N-ビストリアルキルシリルカーバメート、アルキルトリアルキルシリルカーボネート、および 3-トリアルキルシリル-2-オキサゾリジノンが電解質溶媒として好ましい。

また、その Si 含有基を含む化合物は、他の溶媒、例えば環状炭酸エステルやリン酸エステルとの混合溶媒の形で使われることが好ましく、混合溶媒中に 0.01～50 重量%を占めるよう添加されることが望ましい。

- 5 また本発明は、前記の非水電解液を含むコンデンサに関し、特に電気二重層コンデンサに関するものである。

さらに本発明は、電極が前記の非水電解液で前処理されているコンデンサ用電極、およびそのような電極を組み込んだコンデンサに関する。

10

[図面の簡単な説明]

図 1 は、実施例で用いた巻回形電気二重層コンデンサ素子の構成を示す斜視図である。

- 図 2 は、実施例で用いた巻回形電気二重層コンデンサ素子を封口
15 部材と共に金属ケースへ挿入する状態を示す斜視図である。

[発明を実施するための最良の形態]

- 次に本発明に係る非水電解液、電極およびそれを用いたコンデンサの各構成について具体的に説明する。ここで非水電解液は、電解
20 質および電解質溶媒とからなっており、コンデンサ、特に電気二重層コンデンサ用の電解液として適している。

Si 化合物

- 本発明に係る非水電解液は、次に示す式 (1) で表される Si 含
25 有基を有する化合物を電解質溶媒として含んでいる。

5

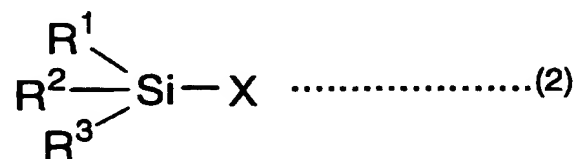


ここで、 R^1 、 R^2 および R^3 は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1～6 のアルキル基のような炭化水素基、および炭素数 1～6 のアルコキシ基のようなオキシ炭化水素基からなる群から選ばれる
 5 1 価の基であって、その炭化水素基またはオキシ炭化水素基の炭化水素部は鎖状であってもフェニル基のように環状であってもよく、また飽和または不飽和であってもよく、さらにその炭化水素部の水素原子の一部がハロゲン原子で置換されていてもよい。

好ましくは、 R^1 、 R^2 および R^3 は、炭素数 1～6 の飽和または不飽和の炭化水素基であって、より好ましくは炭素数 1～3 のアルキル基である。また、アルキル基の水素原子の一部または全部がハロゲン原子、特にフッ素原子に置換された基であってもよい。これらの基は、互いに同一であっても異なってもよいが、いずれも同一である場合が好ましい。

15 そのような基の例として、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリプロピルシリル基、トリフルオロメチルシリル基、トリメトキシシリル基等を挙げることができる。

このような式 (1) で表される Si 含有基を有する Si 化合物は、次の一般式 (2) で示される化合物が好ましい。



20

ここで、X は次に説明する式 (3)～(14) の中から任意に選択され、化合物 (a)～(1) を形成する。

(a) オキサゾリジノン化合物



式(3)において、水素原子の一部が炭素数1～4の飽和または不飽和の炭化水素基、アルコキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、またはハロゲン原子で置換されていてもよい。炭化水素基は、

5 その水素原子の一部または全部がハロゲン原子で置換されていてもよい。

この基を有する化合物の具体例として、3-トリメチルシリル-2-オキサゾリジノン、3-トリメチルシリル-4-トリフルオロメチル-2-オキサゾリジノン、3-トリエチルシリル-2-オキサゾリジノン等が挙げられる。

10

(b) イミダゾール化合物

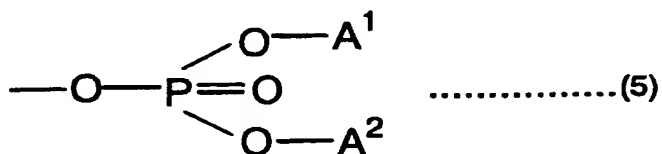


式(4)において、水素原子の一部が炭素数1～4の飽和または不飽和の炭化水素基、アルコキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、またはハロゲン原子で置換されていてもよい。

15

この基を有する化合物の具体例として、N-トリメチルシリルイミダゾール、N-トリメチルシリル-4-メチルイミダゾール、N-トリエチルシリルイミダゾール等が挙げられる。

(c) ホスフェート化合物



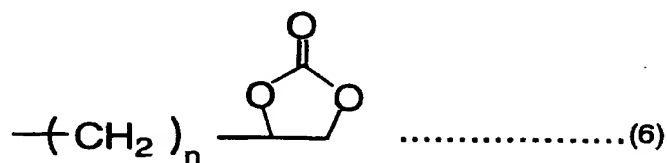
20

式(5)において、A¹ および A² は、炭素数1～6の飽和また

は不飽和の炭化水素基または前記の式(1)で表されるSi含有基であって、互いに同一であっても異なってもよい。

- この基を有する化合物の具体例として、トリス(トリメチルシリル)ホスフェート、トリス(トリエチルシリル)ホスフェート、トリメチルシリルジメチルホスフェート、トリメチルシリルジアリルホスフェート等が挙げられる。

(d) 環状カーボネート化合物



- 式(6)において、環を構成する炭素原子に結合した水素原子の一部が炭素数1~4の飽和または不飽和の炭化水素基、アルコキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、ハロゲン原子または前記の式(1)で表されるSi含有基で置換されていてもよく、nは0、1、または2である。

- この基を有する化合物の具体例として、4-トリメチルシリルー1,3-ジオキソラン-2-オン、4-トリメチルシリルー5-ビニルー1,3-ジオキソラン-2-オン、4-トリメチルシリルメチルー1,3-ジオキソラン-2-オン等が挙げられる。

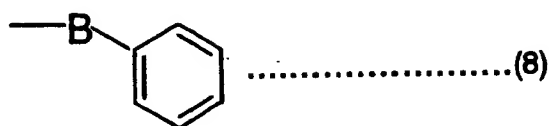
(e) フェニル化合物(1)



- 式(7)において、ベンゼン環を構成する炭素原子に結合した水素原子の一部が炭素数1~4の飽和または不飽和の炭化水素基、アルコキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、ハロゲン原子または前記の式(1)で表されるSi含有基で置換されていてもよい。

この基を有する化合物の具体例として、フェニルトリメチルシラン、フェニルトリエチルシラン、フェニルトリメトキシシラン等が挙げられる。

(f) フェニル化合物 (2)



5

式 (8) において、B は、 ---NH--- 、 $\text{---N(CH}_3\text{)---}$ 、 $\text{---CH}_2\text{---}$ 、 ---CO--- 、 ---S--- 、 $\text{---SO}_2\text{---}$ からなる群から選ばれる 2 価のいずれかの基であって、またベンゼン環を構成する炭素原子に結合する水素原子の一部が炭素数 1~4 の飽和または不飽和の炭化水素基、アルコキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、ハロゲン原子または前記の式 (1) で表される Si 含有基で置換されていてもよい。

10

この基を有する化合物の具体例として、フェニルチオトリメチルシラン、フェニルチオトリエチルシラン等が挙げられる。

15 (g) エーテル化合物 (1)



式 (9) において、 A^3 は、炭素数 1~6 の 1 価の飽和または不飽和の炭化水素基または前記の式 (1) で表される Si 含有基であって、前記の炭化水素基は鎖状であっても環状であってもよい。

20

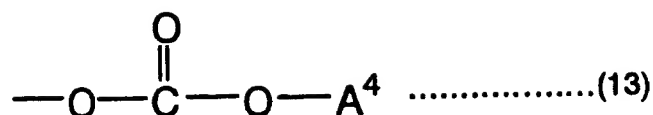
この基を有する化合物の具体例として、メトキシトリメチルシラン、ヘキサメチルジシロキサン、ペンタメチルジシロキサン等が挙げられる。

(h) エーテル化合物 (2)



25

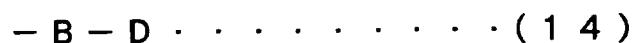
式 (10) において、 A^3 および B は、各々式 (8) および (9)



式 (13) において、 A^4 は、式 (12) で示した基と同じである。

この基を有する化合物の具体例として、メチルトリメチルシリルカーボネート、アリルトリメチルシリルカーボネート、エチルトリメチルシリルカーボネート等が挙げられる。

(1) その他化合物



式 (14) において、B および D は、各々式 (8) および式 (11) で示した基と同じである。

この基を有する化合物の具体例として、ヘキサメチルジシラザン等が挙げられる。

前記の Si 含有基を有する化合物の中でも、化合物 (b)、(c)、(d)、(i)、(j) および (k) が好ましい。

それらの中の好ましい化合物として、N-トリアルキルシリルイミダゾール、トリス (トリアルキルシリル) ホスフェート、4-トリアルキルシリルメチル-1,3-ジオキソラン-2-オン、トリアルキルククロシラン、トリフルオロアルキルトリアルキルシラン、アリルトリアルキルシラン、ジアリルジアルキルシラン、トリアリルアルキルシラン、アセチルトリアルキルシラン、アルキル-N-トリアルキルシリルカーバメート、アルキル-N, N-ビストリアルキルシリルカーバメート、およびアルキルトリアルキルシリルカーボネートからなる群から選ばれるいずれかの化合物を挙げることができる。

さらに好ましい具体例として、N-トリメチルシリルイミダゾール、トリス（トリメチルシリル）ホスフェート、アリルトリメチルシラン、4-トリメチルシリルメチルー1，3-ジオキサラン-2-オン、メチルーN-トリメチルシリルカーバメート、メチルーN，
5 N-ビストリメチルシリルカーバメート、およびメチルトリメチルシリルカーボネートを挙げることができる。

また、本発明では、3-トリメチルシリルー2-オキサゾリジノン等の3-トリアルキルシリルー2-オキサゾリジノンも好ましく使用できる。

10

なお、Si化合物は、1種を単独で使用しても、あるいは2種以上を組み合わせ使用してもよい。

このような式（2）で表されるSi化合物は、化学的に安定で、耐酸性に優れ、空气中に放置しても酸化されにくく、通常の保存状態
15 態で水と反応したり、金属リチウムのような反応性の高い物質と反応する可能性も小さい。さらに、このようなSi化合物は、物理的にも安定で、熱分解されにくく、難燃性が高まり、電気化学的な酸化、還元を受けにくいという特性を有している。一方、これらSi化合物は、引火点が比較的に高いので、火災に対する安全性も優れ
20 ている。

電 解 質 溶 媒

本発明では、電解質溶媒として、前記のSi化合物が単独で、あるいはSi化合物と他の溶媒とを組み合わせた混合溶媒の形で用い
25 られる。混合溶媒として使用する場合には、式（2）で表されるSi化合物が、溶媒中に0.01～50重量%、好ましくは0.1～30重量%混合されることが望ましい。この範囲内であると、電気

化学的にも物理的にも安定な電解質溶媒が形成され、難燃性が向上した溶媒になるので好ましい。

混合溶媒に使用できる他の溶媒としては、次に例示する環状炭酸エステル類、鎖状炭酸エステル類、環状エステル類、鎖状エステル類、環状エーテル類、鎖状エーテル類、リン酸エステル類、含イオウ化合物等の中から任意に選択して使用することができる。

(1) 環状炭酸エステル類：

エチレンカーボネート(1,3-ジオキソラン-2-オン)、
プロピレンカーボネート(4-メチル-1,3-ジオキソ
10 ラン-2-オン)、ブチレンカーボネート(4,5-ジメチ
ル-1,3-ジオキソラン-2-オン)、ビニレンカーボネ
ートなど。

また、モノフルオロメチルエチレンカーボネート、ジフル
オロメチルエチレンカーボネート、トリフルオロメチルエ
チレンカーボネートなどのハロゲン原子置換アルキル基を
15 有する環状炭酸エステルであってもよい。

(2) 鎖状炭酸エステル類：

ジメチルカーボネート、メチルエチルカーボネート、ジエ
チルカーボネート、メチルプロピルカーボネート、メチル
20 イソプロピルカーボネートなど。

(3) 環状エステル類：

γ-ブチロラクトン、γ-バレロラクトン、3-メチル
-γ-ブチロラクトン、2-メチル-γ-ブチロラクトン
など。

25 (4) 鎖状エステル類：

蟻酸メチル、蟻酸エチル、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸
プロピル、プロピオン酸メチル、酪酸メチル、吉草酸メチ

ルなど。

(5) 環状エーテル類：

1, 4-ジオキサン、1, 3-ジオキソラン、テトラヒドロフラン、2-メチルテトラヒドロフラン、3-メチル-
5 1, 3-ジオキソラン、2-メチル-1, 3-ジオキソランなど。

(6) 鎖状エーテル類：

1, 2-ジメトキシエタン、1, 2-ジエトキシエタン、
ジエチルエーテル、ジメチルエーテル、メチルエチルエー
10 テル、ジプロピルエーテルなど。

(7) リン酸エステル類：

リン酸トリメチル、リン酸トリエチル、リン酸トリアリ
ルなど。

(8) 含イオウ化合物類：

15 スルホランなど。

これらの溶媒の中では、環状炭酸エステルおよび／またはリン酸
エステルの使用が、充放電サイクルおよび難燃性を一層向上させる
上で好ましい。また、これらの溶媒は、1種または2種以上を混合
して使用することができる。

20

電 解 質

本発明に係る非水電解液中に含まれる電解質としては、アンモニ
ウム塩、ホスホニウム塩、その他を使用することができる。それら
は、単独で使用することもできるし、また2種類以上を組み合わせ
25 て使用することもできる。具体的には、次の化合物を例示すること
ができる。

(1) アンモニウム塩：

4 フッ化ほう酸 4 ブチルアンモニウム ($(C_4H_9)_4NBF_4$)、4 フッ化ほう酸 4 エチルアンモニウム ($(C_2H_5)_4NBF_4$)、4 フッ化ほう酸 3 エチル 1 メチルアンモニウム ($(C_2H_5)_3(CH_3)NBF_4$)、6 フッ化リン酸 4 ブチルアンモニウム ($(C_4H_9)_4NPF_6$)、6 フッ化リン酸 4 エチルアンモニウム ($(C_2H_5)_4NPF_6$)、6 フッ化リン酸 3 エチル 1 メチルアンモニウム ($(C_2H_5)_3(CH_3)NPF_6$) など。

(2) ホスホニウム塩：

4 フッ化ほう酸 4 ブチルホスホニウム ($(C_4H_9)_4PBF_4$)、4 フッ化ほう酸 4 エチルホスホニウム ($(C_2H_5)_4PBF_4$)、6 フッ化リン酸 4 ブチルホスホニウム ($(C_4H_9)_4PPF_6$)、6 フッ化リン酸 4 エチルホスホニウム ($(C_2H_5)_4PPF_6$) など。

(3) その他、国際公開番号 WO 95 / 1 5 5 7 2 号公報記載の電解質など。

これらの化合物の中でも、 $(C_4H_9)_4NBF_4$ 、 $(C_2H_5)_4NBF_4$ 、 $(C_2H_5)_3(CH_3)NBF_4$ の使用が好ましい。電解質は、電解液中に通常 0.1 ~ 3 (モル/リットル)、好ましくは、0.3 ~ 1.5 (モル/リットル) の濃度で含まれていることが望ましい。

電極およびコンデンサ

本発明に係わる非水電解液は、アルミ電解コンデンサを含むコンデンサ一般に使用できるが、特に電気二重層コンデンサに好適に使用できる。

電気二重層コンデンサの構造は、2 枚の電極とセパレータと通常耐食性の電解液とから構成されている。具体的には、2 枚の電極がセパレータを介して対向するように配置されており、この電極と多

孔性セパレータとの間、および多孔性セパレータ内には電解液が満たされている。

電極は、活性炭のような表面積の大きな材料とフッ素樹脂などの結着剤とから形成される。その電極材料として好ましく使用される

5 活性炭は、フェノール系、ピッチ系、ポリアクリロニトリル系、ヤシガラ系、コークス系などの繊維状または粉末状のものが一般に用いられ、通常、比表面積が $1000 \text{ (m}^2/\text{g)}$ 以上のものが好ましい。また、その活性炭は、水蒸気賦活処理法やアルカリ賦活処理法などの方法によって賦活処理がなされてから使用されている。

10 結着剤としては、カルボキシメチルセルロース、ポリフッ化ビニリデン、ポリビニルピロリドン、ポリイミド、ポリビニルアルコール、ポリアクリル酸等が使用され、この結着剤によって電極材料を結合させ、形状を整え、電極が製造されている。

ここで、電極は、前述した非水電解液で前処理してから使用することもできる。前処理方法としては、電極に非水電解液を噴霧したり、電極を非水電解液に浸漬する等の方法で行うことができる。この

15 のような前処理を施すことによって、電極は非水電解液とのなじみが増し、電極表面が安定化するためにコンデンサ容量を高めることができる。なお、前処理された電極は、陽極側または陰極側の少なくとも一方に使用することが望ましく、電気二重層コンデンサのみならずコンデンサ一般に使用することができる。

20

また、電極は、通常前記した電極材料（活物質）と集電体とを組み合わせる用いられることが多く、その集電体としては例えばアルミニウム箔が好ましく用いられる。一方、セパレータとしては、

25 リエチレンやポリプロピレン製の多孔質フィルム、クラフト紙、マニラ紙、ガラスフィルター等が好適に使用されている。

本発明の非水電解液は、集電体金属の表面処理にも用いることが

でき、それによって集電体金属の腐食を抑制することができる。

- 一例として、巻回形電気二重層コンデンサ素子の構成を説明すると、コンデンサ素子は陽極側リード線を接続した陽極側分極性電極と、陰極側リード線を接続した陰極側分極性電極と、その間にセパレータを介在させ、三者を一緒に巻回した構造になっている。陽極側リード線と陰極側リード線にはゴム製の封口部材が取り付けられており、このコンデンサ素子を駆動用電解液で含浸させた後、アルミニウム製有底円筒状金属ケース内に挿入し収納されている。この金属ケースの開口部に横絞り加工とカーリング加工とを施すことによ
- 5
- 10

実 施 例

次に本発明を実施例を通してより具体的に説明するが、本発明はそれら実施例によって何ら限定されるものではない。

- 15
- まず、実施例および比較例で使用した巻回形電気二重層コンデンサ素子の作製について図1および図2を参照して説明する。

- コンデンサ素子1は、図1に示したように、陽極側の分極性電極3、陰極側の分極性電極5、およびその間に介在させたセパレータ6とを共に巻き回して円筒状に形成した。ここで、各分極性電極は、
- 20
- 活性炭粉末にアセチレンブラックおよびカルボキシメチルセルローズとを添加して混合し、その混合粉末を水中に分散させてスラリー状にし、そのスラリーを粗面化したアルミニウム箔上に塗布し、乾燥させることによって製造したものである。

- コンデンサー素子1には各実施例で調製した電解液を含浸させ、
- 25
- 図2に示したように、その後そのコンデンサー素子1をアルミニウム製有底円筒状ケース8の中に収納した。一方、陽極側の分極性電極3には陽極側リード線2を、また陰極側の分極性電極5には陰極

側リード線 4 をそれぞれ接続し、各リード線はゴム製の封口部材 7 を通して引き出した。その封口部材 7 を、円筒状ケース 8 の開口部に取り付け、その後開口部に横絞り加工とカーリング加工とを施して、開口部を封口部材 7 によって密封し、巻回形電気二重層コンデンサ 9 を得た。このコンデンサは、直径 18 mm、高さ 40 mm の大きさであった。

(実施例 1)

プロピレンカーボネートと N-トリメチルシリルイミダゾールとを、重量比で 95 : 5 の割合で混合した混合溶媒に、4 フッ化ほう酸 4 エチルアンモニウム ($(C_2H_5)_4NBF_4$) 2.71 g (0.0125 モル) を溶解し、電解質濃度 0.5 (mol/l) の電解液を 25 ml 調製した。得られた電解液について漏れ電流量を測定し、その結果を表 1 に記した。

ここで、漏れ電流量は次の方法で測定した。作用極および対極に活性炭電極を使用し、参照極に Ag / Ag⁺ 電極を使用した 3 極式耐電圧測定セルに前記の電解液を入れ、ポテンシヨガルバナスタットで 2.0 V の電位をかけ、流れる電流量が一定になったときの電流量を漏れ電流量として測定した。

次に、この電解液を先に説明したコンデンサの作製時に使用して、定格 2.3 V 50 F の電気二重層コンデンサを作成した。その後、70 °C の環境下において 2.5 V を印加し、その時に発生したガスによる円筒型ケースの変形を製品外観変形量として経時測定した。この高温負荷試験の開始から 500 時間経過後の変形量を表 1 に併せて記した。

(実施例 2)

実施例 1 において、プロピレンカーボネートの代わりにリン酸トリメチルを用いた以外は実施例 1 と同様に行い、電解液の漏れ電流

量および高温負荷試験における製品外観変形量を測定し、その結果を表 1 に併せて記した。

(実施例 3)

5 実施例 1 において、N-トリメチルシリルイミダゾールの代わりに 3-トリメチルシリル-2-オキサゾリジノンを用いた以外は実施例 1 と同様に行い、電解液の漏れ電流量および高温負荷試験における製品外観変形量を測定し、その結果を表 1 に併せて記した。

(実施例 4)

10 実施例 1 において、N-トリメチルシリルイミダゾールの代わりに トリス (トリメチルシリル) ホスフェートを用いた以外は実施例 1 と同様に行い、電解液の漏れ電流量および高温負荷試験における製品外観変形量を測定し、その結果を表 1 に併せて記した。

(実施例 5)

15 実施例 4 において、プロピレンカーボネートの代わりにリン酸トリメチルを用いた以外は実施例 4 と同様に操作し、電解液の漏れ電流量および高温負荷試験における製品外観変形量を測定し、その結果を表 1 に併せて記した。

(実施例 6)

20 実施例 5 において、リン酸トリメチルとトリス (トリメチルシリル) フォスフェートとを、重量比 99 : 1 の割合で混合した混合溶媒を用いた以外は実施例 5 と同様の操作を行った。電解液の漏れ電流量および高温負荷試験における製品外観変形量を測定し、その結果を表 1 に併せて記した。

(実施例 7)

25 実施例 2 において、N-トリメチルシリルイミダゾールの代わりにトリメチルクロロシランを用いた以外は実施例 2 と同様に操作した。電解液の漏れ電流量および高温負荷試験における製品外観変形

量を測定し、その結果を表 1 に併せて記した。

(実施例 8)

実施例 1 において、N-トリメチルシリルイミダゾールの代わりにアリルトリメチルシランを用いた以外は実施例 2 と同様に操作した。電解液の漏れ電流量および高温負荷試験における製品外観変形量を測定し、その結果を表 1 に併せて記した。

(実施例 9)

実施例 1 において、N-トリメチルシリルイミダゾールの代わりにメチルーN-トリメチルシリルカーバメートを用いた以外は実施例 2 と同様に操作した。電解液の漏れ電流量および高温負荷試験における製品外観変形量を測定し、その結果を表 1 に併せて記した。

(比較例 1)

実施例 1 において、プロピレンカーボネートとN-トリメチルシリルイミダゾールの混合溶媒の代わりに、プロピレンカーボネートのみを用いた以外は実施例 1 と同様に操作して電解液を調製した。得られた電解液の漏れ電流量を測定し、その結果を表 1 に併せて記した。

表 1

	電解質溶媒の種類 (重量比)	漏れ電流量 (μA)	製品変形量 (mm)
実施例 1	プロピレンカーボネート： N-トリメチルシリルイミダゾール = 95 : 5	180	1.5
実施例 2	リン酸トリメチル： N-トリメチルシリルイミダゾール = 95 : 5	270	1.7
実施例 3	プロピレンカーボネート： 3-トリメチルシリル-2-オキサ ゾリジノン= 95 : 5	270	1.6
実施例 4	プロピレンカーボネート： トリス（トリメチルシリル）ホスフ ェート= 95 : 5	90	1.4
実施例 5	リン酸トリメチル： トリス（トリメチルシリル）ホスフ ェート= 95 : 5	140	1.5
実施例 6	リン酸トリメチル： トリス（トリメチルシリル）ホスフ ェート= 99 : 1	250	1.6
実施例 7	リン酸トリメチル： トリメチルクロロシラン = 95 : 5	150	1.8
実施例 8	プロピレンカーボネート： アリルトリメチルシラン = 95 : 5	80	1.2
実施例 9	プロピレンカーボネート： メチル-N-トリメチルシリルカー バメート= 95 : 5	130	1.5
比較例 1	プロピレンカーボネート = 100	280	2.1

表 1 より、実施例 1 ～ 9 の電解液は比較例 1 の電解液に比べ漏れ電流量が少ないことから耐電圧に優れており、また高温負荷試験に
5 おける製品変形量も小さいことがわかった。

[産業上の利用可能性]

本発明に係る非水電解液は、Si 化合物を含む電解質溶媒を使用しているために、コンデンサ用電解液として利用した場合、高温で

のガス発生が少なく、耐電圧が高く、充放電サイクル特性に優れた電解液になる。また、その電解質溶媒は、引火点が高く、火災に対する安全性も優れている。

このような非水電解液を用いたコンデンサは、耐電圧が高く、充
5 放電サイクル特性に優れ、かつエネルギー密度が高いコンデンサを得ることができる。またこのコンデンサは、長寿命で、また火災に対する安全性が優れており、これらのことから特に電気二重層コンデンサに好適である。

さらに、電極をこのような非水電解液で予め処理しておくことも
10 でき、そのような処理を施しておくことで電極表面が安定化するためにコンデンサ容量を高めることができ、高性能のコンデンサを得ることができる。

請 求 の 範 囲

1. 電解質および式(1)で表されるSi含有基を有する化合物を含む電解質溶媒



5

(式中、 R^1 、 R^2 および R^3 は、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～6の炭化水素基、および炭素数1～6のオキシ炭化水素基からなる群から選ばれる1価の基であって、その炭化水素基またはオキシ炭化水素基の炭化水素部は鎖状であっても環状であってもよく、また炭化水素部は飽和であっても不飽和であってもよく、さらにその炭化水素部の水素原子の一部がハロゲン原子で置換されていてもよく、また R^1 、 R^2 および R^3 は互いに同一であっても異なってもよい)

10

とからなることを特徴とするコンデンサ用非水電解液。

15

2. 前記の式(1)で表されるSi含有基の R^1 、 R^2 および R^3 が、炭素数1～6の飽和または不飽和の炭化水素基であることを特徴とする請求の範囲1に記載のコンデンサ用非水電解液。

20

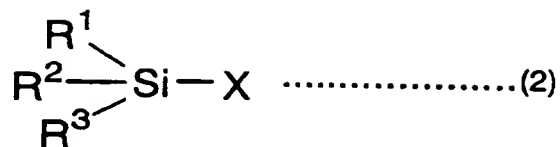
3. 前記の式(1)で表されるSi含有基の R^1 、 R^2 および R^3 が、炭素数1～3のアルキル基であって、かつそれらが同一であることを特徴とする請求の範囲1に記載のコンデンサ用非水電解液。

4. 前記の式(1)で表されるSi含有基の R^1 、 R^2 および R^3 が、メチル基、エチル基、およびトリフロロメチル基からなる群から選ばれるいずれかの基であることを特徴とする請求の範囲1に記載のコンデンサ用非水電解液。

25

5. 前記の式(1)で表されるSi含有基を有する化合物が、式

(2) で表され、



ここで X は、次に記す式 (3) ~ (14) からなる群から選ばれる
いずれかの基であることを特徴とする請求の範囲 1 ~ 3 のいずれか
5 に記載のコンデンサ用非水電解液。

(a)



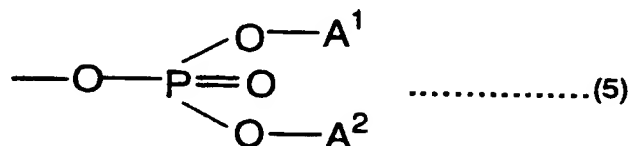
(式 (3) において、水素原子の一部が炭素数 1 ~ 4 の飽和または
不飽和の炭化水素基、アルコキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ
10 基、またはハロゲン原子で置換されていてもよい)

(b)



(式 (4) において、水素原子の一部が炭素数 1 ~ 4 の飽和または
不飽和の炭化水素基、アルコキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ
15 基、またはハロゲン原子で置換されていてもよい)

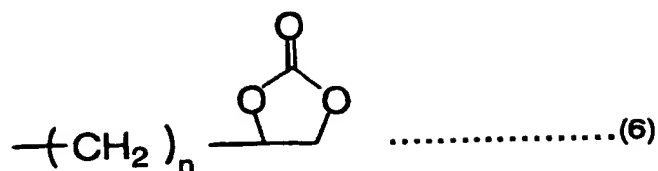
(c)



(式 (5) において、 A^1 および A^2 は、炭素数 1 ~ 6 の飽和または
不飽和の炭化水素基または前記の式 (1) で表される Si 含有基

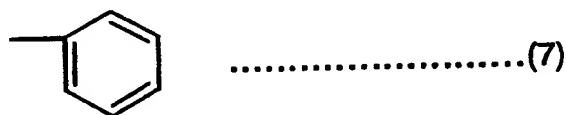
であって、互いに同一であっても異なってもよい)

(d)



- 5 (式(6)において、環を構成する炭素原子に結合する水素原子の一部が炭素数1~4の飽和または不飽和の炭化水素基、アルコキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、ハロゲン原子または前記の式(1)で表されるSi含有基で置換されていてもよく、nは0、1または2である)

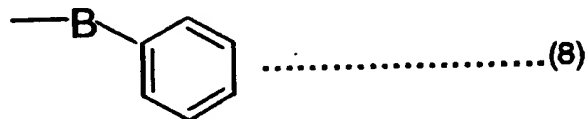
(e)



10

(式(7)において、ベンゼン環を構成する炭素原子に結合する水素原子の一部が炭素数1~4の飽和または不飽和の炭化水素基、アルコキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、ハロゲン原子または前記の式(1)で表されるSi含有基で置換されていてもよい)

15 (f)



- 20 (式(8)において、Bは、 ---NH--- 、 $\text{---N(CH}_3\text{)---}$ 、 $\text{---CH}_2\text{---}$ 、 ---CO--- 、 ---S--- 、 $\text{---SO}_2\text{---}$ からなる群から選ばれる2価のいずれかの基であって、またベンゼン環を構成する炭素原子に結合した水素原子の一部が炭素数1~4の飽和または不飽和の炭化水素基、アルコキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、ハロゲン原

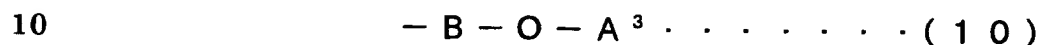
子または前記の式 (1) で表される Si 含有基で置換されていてもよい)

(g)



- 5 (式 (9) において、 A^3 は、炭素数 1 ~ 6 の 1 価の飽和または不飽和の炭化水素基または前記の式 (1) で表される Si 含有基であって、また前記の炭化水素基は鎖状であっても環状であってもよい)

(h)



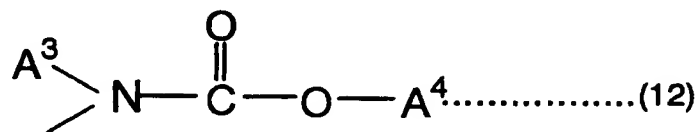
(式 (10) において、 A^3 および B は、各々式 (8) および (9) で示した基と同じである)

(i)



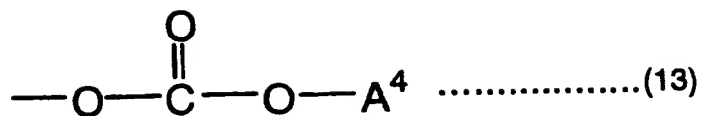
- 15 (式 (11) において、D は、ハロゲン原子、水素原子、炭素数 1 ~ 6 の 1 価の飽和または不飽和の炭化水素基、アセチル基、および式 (1) で表される Si 含有基からなる群から選ばれるいずれかの基であって、炭化水素基の一部の水素原子がハロゲン原子またはアルコキシ基で置換されていてもよい)

20 (j)



(式 (12) において、 A^3 は、式 (9) で示した基と同じであって、 A^4 は、炭素数 1 ~ 6 の飽和または不飽和の炭化水素基である)

(k)



(式(13)において、 A^4 は、式(12)で示した基と同じである)

(1)

5 $\text{---B---D} \text{(14)}$

(式(14)において、BおよびDは、各々式(8)および式(11)で示した基と同じである)

6. 前記の式(2)で表される化合物が、N-トリアルキルシリ
 ルイミダゾール、トリス(トリアルキルシリル)ホスフェート、4
 10 -トリアルキルシリルメチルー1, 3-ジオキソラン-2-オン、
 トリアルキルクロロシラン、トリフルオロアルキルトリアルキルシ
 ラン、アリルトリアルキルシラン、ジアリルジアルキルシラン、ト
 リアリルアルキルシラン、アセチルトリアルキルシラン、アルキル
 -N-トリアルキルシリルカーバメート、アルキル-N, N-ビス
 15 トリアルキルシリルカーバメート、アルキルトリアルキルシリルカ
 ーボネート、および3-トリアルキルシリルー2-オキサゾリジノ
 ンとからなる群から選ばれるいずれかの化合物であることを特徴と
 する請求の範囲5に記載のコンデンサ用非水電解液。

7. 前記の式(2)で表される化合物が、N-トリメチルシリル
 20 イミダゾール、トリス(トリメチルシリル)ホスフェート、アリル
 トリメチルシラン、4-トリメチルシリルメチルー1, 3-ジオキ
 ソラン-2-オン、メチルーN-トリメチルシリルカーバメート、
 メチルーN, N-ビストリメチルシリルカーバメート、メチルトリ
 メチルシリルカーボネート、および3-トリメチルシリルー2-オ
 25 キサゾリジノンとからなる群から選ばれるいずれかの化合物である

ことを特徴とする請求の範囲 5 に記載のコンデンサ用非水電解液。

8. 前記の電解質溶媒が、式 (2) で表される化合物と、環状炭酸エステルおよび／またはリン酸エステルとの混合溶媒であることを特徴とする請求の範囲 1 ～ 7 のいずれかに記載のコンデンサ用非水電解液。

9. 前記の電解質溶媒が、式 (2) で表される化合物を 0.01 ～ 50 重量%含有していることを特徴とする請求の範囲 1 ～ 8 のいずれかに記載のコンデンサ用非水電解液。

10. 前記のコンデンサが、電気二重層コンデンサであることを特徴とする請求の範囲 1 ～ 9 のいずれかに記載のコンデンサ用非水電解液。

11. 請求の範囲 1 ～ 9 のいずれかに記載のコンデンサ用非水電解液を含むことを特徴とするコンデンサ。

12. 請求の範囲 1 ～ 9 のいずれかに記載のコンデンサ用非水電解液を含むことを特徴とする電気二重層コンデンサ。

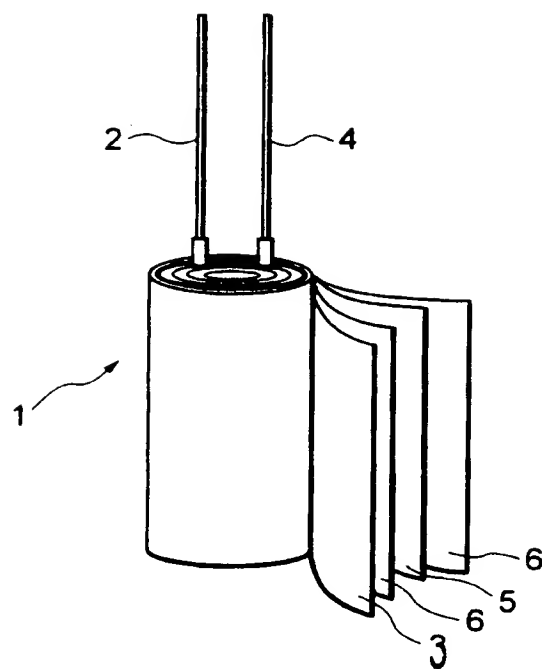
13. コンデンサの電極が、請求の範囲 1 ～ 9 のいずれかに記載の電解質溶媒で前処理されていることを特徴とするコンデンサ用電極。

14. コンデンサを構成する少なくとも一方の電極が、請求の範囲 13 に記載のコンデンサ用電極であることを特徴とするコンデンサ。

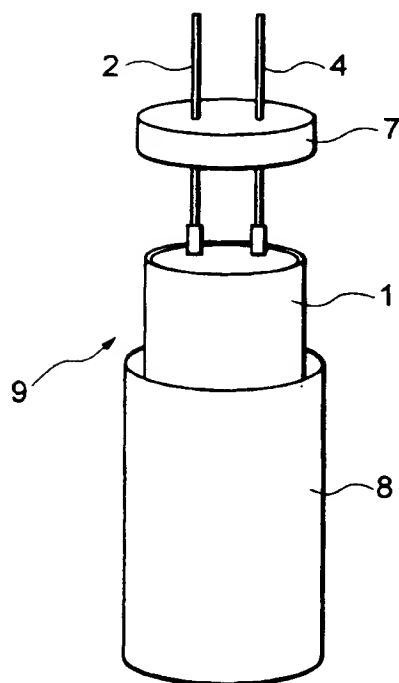


1 / 1

【図 1】



【図 2】





J

Y

Y

2

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/03582

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl.⁷ H01G9/038

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ H01G9/038, H01G9/035

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2000	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 10-241999, A (Nippon Chemi-Con Corporation),	1-5, 9-12
Y	11 September, 1998 (11.09.98), Claims; Par. Nos. [0011] to [0012] (Family: none)	8, 13-14
Y	JP, 11-87184, A (Mitsui Chemicals, Ltd.), 30 March, 1999 (30.03.99), Claims; Par. No. [0028] & EP, 908905, A	8
Y	JP, 10-125560, A (Honda Motor Co., Ltd.), 15 May, 1998 (15.05.98), Claims (Family: none)	13-14
Y	JP, 7-22295, A (FDK CORPORATION), 24 January, 1995 (24.01.95), Claims (Family: none)	13-14
A	WO, 97/42251, A (DAISO CO., LTD.), 13 November, 1997 (13.11.97), Claims & EP, 897941, A	1-14

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.
 ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
22 August, 2000 (22.08.00)Date of mailing of the international search report
05 September, 2000 (05.09.00)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/03582

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 10-204172, A (DAISO CO., LTD.), 04 August, 1998 (04.08.98), Claims & EP, 838487, A	1-14
A	JP, 8-505650, A (Arthur D. Little, Inc.), 18 June, 1996 (18.06.96), Claims & WO, 94/14828, A	1-14
A	JP, 10-69912, A (JSR Corporation), 10 March, 1998 (10.03.98), Claims; Par. Nos. [0003] to [0005] (Family: none)	1-14

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/03582

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ H01G9/038

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ H01G9/038, H01G9/035

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	J P, 10-241999, A (日本ケミコン株式会社), 11.9月. 1998 (11.09.98), 特許請求の範囲, 【0011】 - 【0012】 (ファミリーなし)	1-5, 9-12 8, 13-14
Y	J P, 11-87184, A (三井化学株式会社), 30.3月. 1999 (30.03.99), 特許請求の範囲, 【0028】 & E P, 908905, A	8
Y	J P, 10-125560, A (本田技研工業株式会社), 15.5月. 1998 (15.05.98), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	13-14

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

22.08.00

国際調査報告の発送日

05.09.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

桑原 清

5R 9375

電話番号 03-3581-1101 内線 3520

C (続き). 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 7-22295, A(富士電気化学株式会社), 24.1月.1995 (24.01.95), 特許請求の範囲(ファミリーなし)	13-14
A	WO, 97/42251, A(ダイソー株式会社), 13.11月.1997 (13.11.97), 特許請求の範囲&EP, 897941, A	1-14
A	JP, 10-204172, A(ダイソー株式会社), 4.8月.1998 (04.08.98), 特許請求の範囲&EP, 838487, A	1-14
A	JP, 8-505650, A(アーサー・ディー・リトル・インコーポレイテッド), 18.6月.1996 (18.06.96), 特許請求の範囲&WO, 94/14828, A	1-14
A	JP, 10-69912, A(ジェイエスアール株式会社), 10.3月.1998 (10.03.98), 特許請求の範囲, 【0003】-【0005】(ファミリーなし)	1-14

3/1/02
0
Translation
09/980586

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference F1567MCF034	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/03582	International filing date (day/month/year) 02 June 2000 (02.06.00)	Priority date (day/month/year) 04 June 1999 (04.06.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC H01G 9/038		
Applicant MITSUI CHEMICALS, INC.		

- This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
- This REPORT consists of a total of 4 sheets, including this cover sheet.

☐ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of _____ sheets.

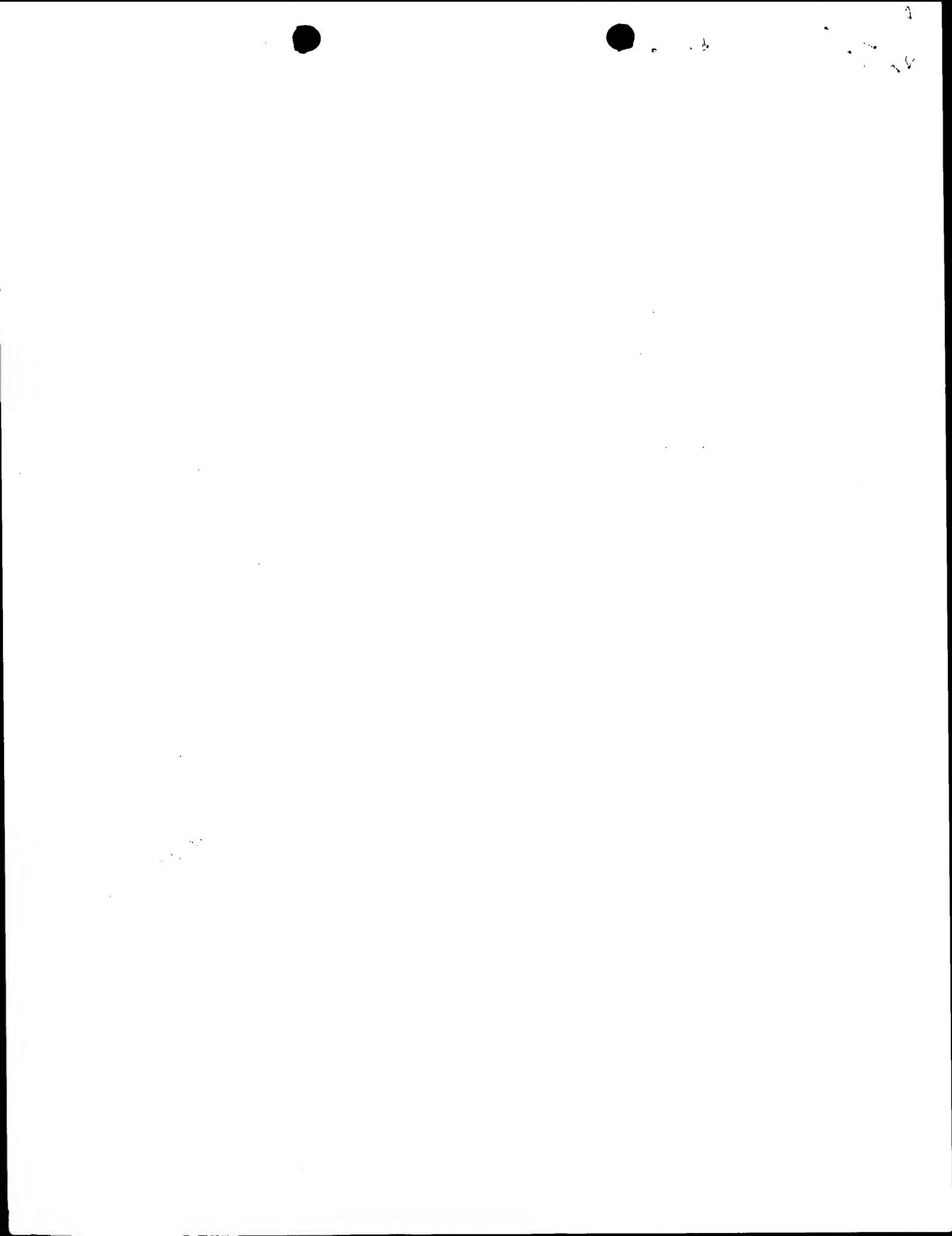
- This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

RECEIVED
APR 19 2002
TC 200 MAIL ROOM

RECEIVED
MAY 08 2002
TC 1700

Date of submission of the demand 25 December 2000 (25.12.00)	Date of completion of this report 23 August 2001 (23.08.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/03582

I. Basis of the report

1. With regard to the **elements** of the international application:*

- ☒ the international application as originally filed
- ☐ the description:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the claims:
pages _____, as originally filed
pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the drawings:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the sequence listing part of the description:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.
PCT/JP 00/03582

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-14	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	6, 7	YES
	Claims	1-5, 8-14	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-14	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

Claims 1 to 5 and 9 to 12

Document 1 (JP, 10-241999, A (Nippon Chemi-Con Corporation), claims; paragraphs [0011] and [0012]) cited in the international search report discloses a non-aqueous electrolyte for a capacitor comprising a compound which contains an electrolyte and a silicon-containing group represented by formula (1) (wherein R¹, R² and R³ are methyl groups/ethyl groups, etc.).

R1 \

R2 - Si - . . . (1)

R3 /

Claim 8

Document 2 (JP, 11-871184, A (Mitsui Chemicals, Inc.), claims; paragraph [0028]) cited in the international search report discloses the feature of using a mixed solvent as the electrolytic solvent and of using a cyclic carbon ester and a phosphate ester as the substances of the mixed solvent.

Claims 13 and 14

Document 3 (JP, 10-125560, A (Honda Motor Co., Ltd.), claims) and Document 4 (JP, 7-22295, A (FDK Corporation), claims) cited in the international search report disclose

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.
PCT/JP 00/03582

electrical double-layer capacitors wherein the pre-treatment uses an electrolytic solvent.

Claims 6 and 7

None of the documents cited in the international search report deprives Claims 6 and 7 of novelty or inventive step. The industrial applicability of this invention is obvious.

